



Docket No.: 62807-15

**PATENT**

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re Application of	:	Customer Number: 20277
	:	
Fumio KAWAMURA, et al.	:	Confirmation Number: 3195
	:	
Serial No.: 10/761,432	:	Group Art Unit: 1714
	:	
Filed: January 22, 2004	:	Examiner: To be Assigned
	:	
For: METHOD FOR REPROCESSING SPENT NUCLEAR FUEL	:	

**TRANSMITTAL OF CERTIFIED PRIORITY DOCUMENT**

Mail Stop  
Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:


At the time the above application was filed, priority was claimed based on the following application:

**Japanese Patent Application No. 2003-018522, filed January 28, 2003**

A copy of the priority application listed above is enclosed.

Respectfully submitted,

MCDERMOTT, WILL & EMERY

  
Keith E. George  
Registration No. 34,111

600 13<sup>th</sup> Street, N.W.  
Washington, DC 20005-3096  
(202) 756-8000 KEG:mcw  
Facsimile: (202) 756-8087  
**Date: May 7, 2004**

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

10/761,432  
62807-157  
KAWAMURA et al.  
January 22, 2004  
McDermott, Will & Emery

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2003年 1月28日

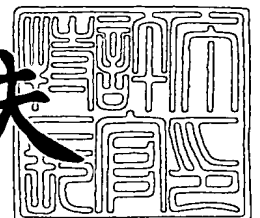
出願番号  
Application Number: 特願2003-018522  
[ST. 10/C]: [JP 2003-018522]

出願人  
Applicant(s): 株式会社日立製作所  
東京電力株式会社

2004年 1月19日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2004-3000685

【書類名】 特許願  
【整理番号】 PE28835  
【提出日】 平成15年 1月28日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【国際特許分類】 G21C 19/00  
【発明者】

【住所又は居所】 茨城県日立市幸町三丁目 1 番 1 号  
株式会社日立製作所 原子力事業部内

【氏名】 河村 文雄

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県日立市幸町三丁目 1 番 1 号  
株式会社日立製作所 原子力事業部内  
【氏名】 星野 国義

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県日立市幸町三丁目 1 番 1 号  
株式会社日立製作所 原子力事業部内  
【氏名】 青井 正勝

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県日立市大みか町七丁目 2 番 1 号  
株式会社日立製作所 電力・電機開発研究所内  
【氏名】 笹平 朗

【発明者】  
【住所又は居所】 東京都千代田区内幸町一丁目 1 番 3 号  
東京電力株式会社内  
【氏名】 天野 治

【発明者】  
【住所又は居所】 東京都千代田区内幸町一丁目 1 番 3 号  
東京電力株式会社内  
【氏名】 小林 広昭

## 【特許出願人】

【識別番号】 000005108

【氏名又は名称】 株式会社日立製作所

## 【特許出願人】

【識別番号】 000003687

【氏名又は名称】 東京電力株式会社

## 【代理人】

【識別番号】 100098017

【弁理士】

【氏名又は名称】 吉岡 宏嗣

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 055181

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9816103

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 使用済核燃料の再処理方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 使用済核燃料の粉末にフッ素を作用させて揮発させるフッ化工程と、該フッ化工程で揮発したフッ化物からプルトニウムフッ化物を取り出す取出工程とを備えた使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 2】 使用済核燃料を脱被覆して得られる核燃料粉末に、フッ素を作用させて揮発させるフッ化工程と、該フッ化工程で揮発したフッ化物のうち、プルトニウムフッ化物を固定化する工程と、ウランフッ化物を精製する工程と、前記固定化されたプルトニウムフッ化物を取り出す取出工程と、該取り出したプルトニウムフッ化物を、水蒸気と水素を作用させて酸化物にする酸化転換工程とを備えた使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 3】 使用済核燃料を脱被覆して得られる核燃料粉末に、フッ素を作用させて揮発させるフッ化工程と、該フッ化工程で揮発したフッ化物のうち、プルトニウムフッ化物を固定化する工程と、ウランフッ化物を精製する工程と、前記固定化されたプルトニウムフッ化物を取り出す取出工程と、該取り出したプルトニウムフッ化物にフッ素を作用させて再びフッ化させる再フッ化工程と、該再フッ化工程でフッ化された気体状のプルトニウムフッ化物を、水蒸気と水素を作用させ酸化物にする気相加水分解工程とを備えた使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 4】 請求項 1～3 のうちいずれか 1 項に記載の再処理方法において、前記フッ化工程では、ウランとプルトニウムとを同時にフッ化させることを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 5】 請求項 1～3 のうちいずれか 1 項に記載の再処理方法において、前記フッ化工程では、フレーム炉を用いることを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 6】 請求項 1～3 のうちいずれか 1 項に記載の再処理方法において、前記プルトニウムフッ化物を取り出す取出工程では、プルトニウムフッ化物を固定化剤と共に取り出すことを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 7】 請求項 6 に記載の再処理方法において、前記プルトニウムフ

ッ化物を固定化する固定化剤として、ウランのフッ化物を用いることを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 8】 請求項 7 に記載の再処理方法において、前記固定化剤として、フッ化ウラニルを用いることを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 9】 請求項 2 に記載の再処理方法において、前記酸化転換工程では、固体状のプルトニウムフッ化物と固体状の固定化剤を共に酸化転換して酸化物にすることを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 1 0】 請求項 2 に記載の再処理方法において、前記酸化転換工程で得られる酸化物の粉末もしくは顆粒状物を、粒状物にする造粒工程を備えたことを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 1 1】 請求項 3 に記載の再処理方法において、前記気相加水分解工程では、気体状のプルトニウムフッ化物と気体状の固定化剤を共に気相加水分解して酸化物にすることを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 1 2】 請求項 3 に記載の再処理方法において、前記気相加水分解工程で得られる酸化物の顆粒状物を、造粒しないで燃料被覆管中に充填することを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

【請求項 1 3】 請求項 2 ～ 3 のうちいずれか 1 項に記載の再処理方法において、前記ウランのフッ化物の精製工程では、ウランのフッ化物を六フッ化物の形態で精製することを特徴とする使用済核燃料の再処理方法。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0 0 0 1】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は使用済核燃料の再処理方法に係り、特に、原子力発電所等で発生する使用済核燃料から、フッ化物の揮発性の差を利用してウランおよびプルトニウムを再処理して回収するのに好適な方法に関する。

##### 【0 0 0 2】

#### 【従来の技術】

使用済核燃料の再処理方法としては、湿式法のピュレックス法が広く採用されている。このピュレックス法は、使用済核燃料を硝酸に溶解し、硝酸溶液中のウ

ラン（U）、プルトニウム（P u）をリン酸トリブチルの有機溶媒で抽出回収する方法である。（例えば、非特許文献 1 参照）。

#### 【0 0 0 3】

水溶液を使わない乾式法としては、2 種類の熔融塩電解法が開発されており、開発国、開発機関の名前からロシア法、A N L 法と呼ばれている。ロシア法は酸化物燃料を塩化物の熔融塩中に溶解し、U 酸化物を電極へ析出させ、P u 酸化物は沈殿させ、それぞれ回収する方法である。A N L 法は金属燃料をそのまま、あるいは酸化物燃料をあらかじめ金属に還元して塩化物の熔融塩に溶解し、U 金属および P u 金属を別々の電極に回収する技術である。

#### 【0 0 0 4】

熔融塩電解法以外の乾式再処理法としては、フッ化物の揮発性の差を利用して再処理を行うフッ化物揮発法が知られている。従来のフッ化物揮発法は、蒸留、部分凝縮、吸着等の技術を駆使して、U と P u を高純度で回収する方法である。（例えば、非特許文献 2 参照）。

#### 【0 0 0 5】

このフッ化物揮発法の改良法として、フッ化の際、フッ化条件を変えて、逐次にフッ化を行う方法がある。この方法では、U のフッ化物と U と P u の混合フッ化物を回収し、かつ U フッ化物は高精製度で、U と P u の混合フッ化物は低精製度で回収することで、核拡散抵抗性の向上、精製工程の省略による経済性向上等を図っている。（例えば、特許文献 1 参照）。

#### 【0 0 0 6】

また、乾式法と湿式法を組み合わせた方法として、フッ化物揮発法とピュレックス法とを組み合わせ、U ならびに U と P u の混合物を高精製度で回収すると共に、設備の小型化により経済性向上を図った方法がある。（例えば、特許文献 2 参照）。

#### 【0 0 0 7】

##### 【非特許文献 1】

M. B e n e d i c t 他著、清瀬量平訳、「原子力化学工学（第 IV 分冊）燃料再処理と放射性廃棄物管理の化学工学」、日刊工業新聞社、昭和 5 8 年 1 2 月 2

9日、p.18-90

【非特許文献2】

「原子力工業」、日刊工業新聞社、2002年11月19日、17巻、第3号、p.53-58

【特許文献1】

特開2000-284089号公報

【特許文献2】

特開2002-257980号公報

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

使用済核燃料の再処理方法としてのピュレックス法は、水溶液系であることや有機溶媒を使用することから、臨界制限が厳しくなること、溶媒の放射線分解による劣化、廃棄物量が比較的多い等のことが問題となるといわれている。

【0009】

一方、水溶液や有機溶媒を使わない乾式法は、臨界の問題や放射線劣化の問題を回避しやすいといわれている。乾式法はいずれも開発途上であるが、酸化物燃料が対象のロシア法は、U製品の精製度が低いこと、塩廃棄物の処理が難しい等の開発課題を有している。

【0010】

また、主に金属燃料が対象のANL法は、我が国の主流である酸化物燃料の処理には、金属への還元という工程付加が必要であり、U製品の精製度、塩廃棄物処理、処理速度向上等の開発課題を有している。

【0011】

溶融塩電解法以外の乾式法である従来型のフッ化物揮発法は、Puを高精製度で回収するため、工程が複雑化すること、Puの精製過程でPuのフッ化物の分解によるPuの回収率の低下することなどの課題があった。

【0012】

上記特許文献1に述べられている改良型のフッ化物揮発法では、従来型のPu分解の問題を回避、解決を図っているが、逐次フッ化を行うため、フッ化装置の



運転が若干煩雑となる。

#### 【 0 0 1 3 】

また、乾式と湿式を組み合わせた上記特許文献 2 に述べられている方法は、高精製の製品、特に U と P u の混合酸化物を得る上で、優れた方法であるが、乾式と湿式という原理の違う方法を組合せた方法であるため、廃棄物処理等のユーティリティが二種類必要という課題がある。

#### 【 0 0 1 4 】

本発明の目的は、使用済核燃料の再処理速度を向上でき、簡素な工程で高純度のウランとそのまま再使用可能なプルトニウム混合物を低コストに得られる再処理方法を提供することにある。

#### 【 0 0 1 5 】

##### 【課題を解決するための手段】

上記目的は、使用済核燃料の粉末にフッ素を作用させて揮発させるフッ化工程と、該フッ化工程で揮発したフッ化物からプルトニウムフッ化物を取り出す取出工程とを備えた使用済核燃料の再処理方法によって達成される。

#### 【 0 0 1 6 】

より具体的には、使用済核燃料を脱被覆して得られる核燃料粉末に、フッ素を作用させて揮発させるフッ化工程と、該フッ化工程で揮発したフッ化物のうち、プルトニウムフッ化物を固定化する工程と、ウランフッ化物を精製する工程と、前記固定化されたプルトニウムフッ化物を取り出す取出工程と、該取り出したプルトニウムフッ化物を、水蒸気と水素を作用させて酸化物にする酸化転換工程とを備えた使用済核燃料の再処理方法によって達成される。

#### 【 0 0 1 7 】

また、上記プルトニウムフッ化物の取出工程で取り出したプルトニウムフッ化物に、フッ素を作用させて再びフッ化させる再フッ化工程と、該再フッ化工程でフッ化された気体状のプルトニウムフッ化物を、水蒸気と水素を作用させ酸化物にする気相加水分解工程とを備えた使用済核燃料の再処理方法によっても達成される。

#### 【 0 0 1 8 】

使用済核燃料の再処理後の製品（U、P u）を燃料として再び使用する場合の用途を考慮すると、Uは製品の高精製度が必要である。しかしP uについては、P u燃料を使用する炉、例えば軽水炉によるプルサーマル、高速増殖炉、低減速炉などのような新型炉では、燃料製造に係わる経済性を向上できる振動充填燃料が使用可能であることを考慮すると低精製度でよいことになり、かつ核拡散抵抗性の観点からも低精製度の方が望ましい。

#### 【0019】

本発明の再処理方法によれば、高精製度のU、低精製度のUとP uの混合物、核分裂生成物（FP）のそれぞれに分離回収することが可能となる。すなわち、使用済核燃料にフッ素を作用させる方法では、使用済核燃料を粉末にして、フッ化工程に供給する。フッ化工程では、例えばフレーム炉と呼ばれる反応器で、核燃料粉末を噴流として吹き出しながらフッ素ガスと反応させることで、核燃料中のU、P uは共に揮発性の六フッ化物になり気体状で揮発する。

#### 【0020】

これらのガスを、P u回収のための固定化剤として吸着剤を充填した吸着塔に通し、P uのフッ化物のみを固定化し、Uの六フッ化物はこの吸着塔を通過させる。Uの六フッ化物は従来のフッ化物揮発法と同様に、フッ化ナトリウム等の吸着剤により容易に精製でき、除染係数DFは $10^7$  に達する。（例えば、日本原子力学会誌9巻第9号530頁以下参照）。

#### 【0021】

したがって、Uはコンパクトな設備で高精製度で回収するという課題が解決できる。このように精製したUは $UF_6$  の化学形であり、Uの濃縮工程に直接適用でき、かつU再利用に係わる一連の処理においても、従来のU燃料製造工場においてペレット燃料に加工可能である。また、高精製度であるため、貯蔵保管するというオプションにも対応可能となる。

#### 【0022】

一方、P u回収吸着塔で吸着され固定化されたP uは、 $PuF_4$  の固体の状態になっている。この $PuF_4$  を固定化剤と共に取り出し、次工程である酸化転換工程において、水蒸気と水素を用いて酸化転換を行うと、P uの酸化物の粉

末もしくは顆粒となる。この場合、P u 固定化用の吸着剤としてUのフッ化物、 $UO_2F_2$  を用いることで、フッ化装置（例えばフレーム炉）から揮発してくる $UF_6$  を吸着せずに、 $PuF_6$  を選択的に吸着することができる。

#### 【0023】

つまり、吸着剤として $UO_2F_2$  を用いることで、酸化転換工程においてUとP u の混合酸化物を得ることができる。酸化転換後の粉末もしくは顆粒状の混合酸化物は、その後、造粒等の操作により、所定の粒径の粒状物とし、振動充填燃料の原料として供給することが可能である。

#### 【0024】

また、P u 回収吸着塔で吸着された $PuF_4$  を吸着剤と共に取り出し、次の酸化転換工程で水蒸気と水素を用いて酸化転換を行う代わりに、 $PuF_4$  と $UO_2F_2$  の混合物を再フッ化させてUとP u を気体状フッ化物とし、再フッ化装置（例えばフレーム炉）から揮発してくる $UF_6$  と $PuF_6$  を、水蒸気と水素を用いて加水分解、いわゆる気相加水分解することで、UとP u の酸化物の顆粒とする。このようにすることで、造粒操作をすることなく得られた混合酸化物の顆粒は、振動充填燃料の原料として供給することが可能である。

#### 【0025】

フッ化工程において揮発しなかった大部分の核分裂生成物（FP）は、フッ化装置やフレーム炉の炉底にフッ化物もしくは酸化物等の形態で堆積するので、これを取り出し、高レベル廃棄物として固化処理する。

#### 【0026】

##### 【発明の実施の形態】

本発明の実施形態の概要は、使用済核燃料の粉末とフッ素ガスとを反応させ、核燃料中のU、P u を共に六フッ化物の揮発性ガスとし、これらのガスからP u フッ化物のみを固定化して分離し、Uの六フッ化物はそのまま精製できるようにしたものである。

#### 【0027】

取り出された固体状のP u フッ化物は、酸化転換して酸化物の粉末もしくは顆粒とし、これを所定粒径の粒状物に造粒して振動充填燃料の好適な原料として供

給できる。また、上記固体状の  $\text{Pu}$  フッ化物を再フッ化させ、得られた気体状の  $\text{Pu}$  フッ化物を気相加水分解して顆粒状の酸化物にすると、そのまま燃料被覆管中に充填する振動充填燃料の好適な原料にできる。以下、本発明の実施形態を図面を参照して説明する。

#### 【0028】

##### 〔実施形態1〕

本発明の使用済核燃料の再処理方法の、基本的な再処理方法である実施形態1について、図1を用いて説明する。燃料被覆管との分離すなわち脱被覆した使用済核燃料1の粉末を、フッ化工程（または装置、以下同）3でフッ素ガス2を供給しフッ化を行う。

#### 【0029】

六フッ化物になり揮発した  $\text{UF}_6$  と  $\text{PuF}_6$  は、 $\text{Pu}$  吸着工程（または装置）5に導入し、吸着剤により  $\text{PuF}_6$  を  $\text{PuF}_4$  として吸着固定化する。 $\text{UF}_6$  は  $\text{Pu}$  吸着装置5を通過し、U精製工程6で精製され  $\text{UF}_6$ （符号7）として回収される。

#### 【0030】

Uは再濃縮する場合は  $\text{UF}_6$  のままボンベ等に保管貯蔵した方が効率的であるし、再濃縮しない場合あるいは燃料原料として使用する場合は、酸化物に変換した方が効率的である。

#### 【0031】

$\text{Pu}$  吸着装置5に吸着した  $\text{PuF}_4$  は吸着剤と共に取り出し、酸化転換装置8で、水蒸気と水素10を供給し、酸化物  $\text{PuO}_2$  にする。酸化転換装置で発生するフッ素は再利用することも可能である。

#### 【0032】

この際、吸着剤に  $\text{UO}_2\text{F}_2$  を用いている場合は、符号9で示す混合酸化物  $\text{UO}_2 / \text{PuO}_2$  として回収される。 $\text{PuO}_2$  もしくは混合酸化物は、混合酸化物燃料（ $\text{MOX}$ ）の原料として利用される。フッ化装置3内に残留した核分裂生成物4は廃棄物処理工程で処理される。

#### 【0033】

本実施形態によれば、フッ化装置 3 と P u 吸着装置 5 だけで、使用済核燃料から U、U と P u の混合物、核分裂生成物をそれぞれに分離して回収することができ、再処理システムの簡素化、再処理プラントの建設、運転コストの低減が可能となる効果がある。再処理システムは簡素であり、核分裂生成物等の廃棄物の発生場所が限られると共に、フッ素ガス等はリサイクル使用するので、放射性廃棄物量の低減が可能となる。

#### 【0034】

回収される U は高精製度のため、再濃縮、貯蔵保管、U ペレット燃料製造が容易である。U と P u の混合物は不純物として核分裂生成物を含むため、核拡散抵抗性上有利であるとの効果があると同時に、燃料製造コストが安いといわれている振動充填燃料の原料として供給可能である。

#### 【0035】

##### [実施形態 2]

本発明の使用済核燃料の再処理方法の実施形態 2 について、軽水炉使用済核燃料を再処理し、高速炉燃料用の混合酸化物を回収する場合について、図 2 を用いて説明する。

#### 【0036】

軽水炉の使用済核燃料棒を必要に応じて所定長に剪断した後、熱分解炉 11 へ装荷し、酸素もしくは空気等の酸化剤と水素等の還元剤を交互に供給して、核燃料酸化物の結晶形や格子定数を変化させ、核燃料物質を粉末化することで、被覆管との分離、すなわち脱被覆を行う。

#### 【0037】

この際、ヨウ素、トリチウム等の揮発性核分裂生成物 (F P) は揮発除去される。粉末化や揮発の程度を高めるためには、加熱や、酸化-還元の変換回数の増加などが有効である。揮発したヨウ素は銀系吸着材等で除去され、粉末化した核燃料物質はフッ化装置 3 であるフレイム炉へ移送される。

#### 【0038】

フレイム炉 3 へ移送された核燃料物質は、実施形態 1 と同様にフッ化される。すなわち、フッ素ガスを供給することにより、U が  $UF_6$  の形態で、P u が P

u F<sub>6</sub> 形態で揮発する。この際、フッ素の供給量を調整し、Uの全量とP u全量を同時にフッ化して揮発させる。

#### 【0039】

U、P u以外の核種、例えばネプツニウム (N p)、テクネシウム (T c) 等も一部が揮発性のフッ化物を精製し揮発するが、後述の精製系6で除去される。フッ化で揮発したU F<sub>6</sub> とP u F<sub>6</sub> は、粒状のU O<sub>2</sub> F<sub>2</sub> を充填したP u回収トラップ5を通すことで、P u F<sub>6</sub> はU O<sub>2</sub> F<sub>2</sub> にP u F<sub>4</sub> の形で吸着し、分離される。

#### 【0040】

U F<sub>6</sub> はそのまま吸着されることなく通過し、U F<sub>6</sub> 精製系6で、フッ化装置3で揮発し同伴している揮発性の核分裂生成物のフッ化物が、N a F、M g F<sub>2</sub>、L i F等の吸着剤で構成される吸着塔で除去され、U F<sub>6</sub> はD F 1 0<sup>7</sup> 程度まで精製される。精製されたU F<sub>6</sub> は、ボンベ内に保管するか、再濃縮あるいは燃料製造の工程へ移送される。

#### 【0041】

ウラン精製の過程で除去されたF Pは、他の工程で除去されるF Pといっしょに高レベル廃棄物として管理される。P u回収トラップ5で吸着されたP u F<sub>4</sub> は、吸着容量が超過する以前に、すなわち超過前に一旦運転を止め、吸着剤のU O<sub>2</sub> F<sub>2</sub> と共に回収し、次工程である酸化転換装置8に移送する。

#### 【0042】

酸化転換装置8はロータリーキルンタイプで、上部よりU O<sub>2</sub> F<sub>2</sub> とP u F<sub>4</sub> の顆粒を供給し、下部より水蒸気と水素の混合ガスを供給し、酸化転換反応により、U O<sub>2</sub>、P u O<sub>2</sub> の混合酸化物粉末が得られる。この際、供給ガスの流量および組成、反応時間などを調整することにより、混合酸化物粒子の大きさを制御できる。

#### 【0043】

これらのUとP uの混合酸化物燃料粒子は、必要に応じて造粒操作等により粒径を調整し、燃料加工工程へ送られて、振動充填により再び燃料として加工される。混合酸化物への変換の際に発生するフッ素を含むガスは、フッ化剤としてリ

サイクル使用される。

#### 【0044】

最終的に、フレイム炉3内には不揮発性のFPが高レベル廃棄物として残る。これら大部分の元素はフッ化物、一部が酸化物あるいは金属として残存するので、他の工程で発生するFPと混合してそのままの形態で圧縮成型するか、ガラス固化、セラミック固化、人工岩石固化等で廃棄体として成型することにより、安定に貯蔵したり処分できる。

#### 【0045】

以上、本実施形態によれば、熱分解炉、フレイム炉、吸着塔、酸化転換塔だけの簡単なシステムで、使用済核燃料からU、UとPuの混合物、FPをそれぞれに分離して回収することができるので、再処理プラントの建設、運転コスト低減が可能となる効果がある。再処理システムが簡素化し、フッ素等をリサイクル使用するので、放射性廃棄物量の低減が可能となる。

#### 【0046】

回収されるUは精製工程を経て高純度となるため、貯蔵保管や再濃縮、燃料（ペレット）製造が容易となり、UとPuの混合物は比較的多くの不純物核種を多く含むため、核拡散（例えば核兵器転用）を防止できる効果がある。また、熱分解炉により燃料を微細化するため、UやUとPuの混合物のフッ化を促進して核燃料物質の回収率を向上できる。

#### 【0047】

酸化転換塔で生成したUとPuの混合酸化物を、そのまま振動充填用の燃料とするため、核燃料物質、特にPuの回収率を向上できる。この際、わざわざ振動充填燃料用の原料を製造する必要がないので、燃料製造加工コストを低減できる効果がある。

#### 【0048】

##### [実施形態3]

本発明の使用済核燃料の再処理法の実施形態3について、図3を用いて説明する。図3の構成は図1の構成からU精製装置を除去した構成である。この構成では、U製品の精製度が低下するが、高速増殖炉のように低DFのU燃料を、たと

例えばブランケットに受け入れられる場合は、再処理工程を更に簡素にでき、再処理コストの低減が可能になる。

#### 【0049】

##### 〔実施形態4〕

本発明の使用済核燃料の再処理法の実施形態4について、図4を用いて説明する。図4の構成は図2の構成にマイナーアクチニド(MA)回収工程13を追加した構成である。この構成では、フレーム炉に残留するFPから長半減期核種であるMAのアメリカシウム(Am)、キュリウム(Cm)を分離回収でき、これらを混合酸化物に混ぜることで、高速増殖炉で使用する場合は燃焼させることができる。同時に、長半減期核種が高レベル廃棄物中に含まれないため管理負担を軽減できる効果がある。

#### 【0050】

##### 〔実施形態5〕

本発明の別の一実施形態である使用済核燃料の再処理方法につき図5を用いて説明する。使用済核燃料1を脱被覆後、フッ化装置3でフッ素ガス2を供給し、フッ化を行う。六フッ化物になり揮発した $UF_6$ と $PuF_6$ は $UO_2F_2$ を用いたPu吸着装置5に導入し、吸着剤により $PuF_6$ を $PuF_4$ として吸着固定化する。 $UF_6$ はPu吸着装置5を通過し、U精製装置6で精製され $UF_6$ 7として回収される。

#### 【0051】

Uは再濃縮する場合は $UF_6$ のままボンベ等に保管貯蔵した方が効率的であるし、再濃縮しない場合、あるいは燃料原料として使用する場合は、酸化物に変換した方が効率的である。Pu吸着装置5に吸着した $PuF_4$ は $UO_2F_2$ 吸着剤と共に取り出す。これらのUとPuのフッ化物固体は、必要に応じて粉碎操作等で粒径を調整した後、再び、第2フッ化工程であるフッ化装置14で、フッ素ガス2を供給し、フッ化を行う。

#### 【0052】

六フッ化物になり揮発した $UF_6$ と $PuF_6$ は、次工程である気相加水分解工程(装置)15に移送する。気相加水分解装置は流動床タイプで、気相加水



分解の際の核となる固体粒子（例えば  $\text{UO}_2$  粒子等）を予め流動媒体として加えて用い、水蒸気と水素  $\text{H}_2$  を供給し、気相加水分解装置 15 内で、気体状の  $\text{UF}_6$  と  $\text{PuF}_6$  を核である固体粒子表面で直接加水分解し、混合酸化物  $\text{UO}_2/\text{PuO}_2$ （符号 9）を得て回収される。混合酸化物は混合酸化物燃料（MOX）の原料として利用される。フッ化装置 3、14 内に残留した核分裂生成物 4 は廃棄物処理工程で処理される。

#### 【0053】

ここで、二度目のフッ化を行う再フッ化装置 14 は、一度目のフッ化を行うフッ化装置 3 と兼用することも可能である。一般に、軽水炉使用済核燃料を処理する場合は、一度目のフッ化と二度目のフッ化でフッ化装置に供給される原料の量が大きく異なり、後者は前者に比べ  $1/5 \sim 1/10$  程度と少なくなるため、それぞれの取扱量に応じたフッ化装置を設ける方が一般的には望ましいと考えられるが兼用することも可能である。

#### 【0054】

本実施形態によれば、使用済核燃料から U、U と Pu の混合物、核分裂生成物をそれぞれに分離して回収することができ、再処理システムの簡素化、再処理プラントの建設、運転コストの低減が可能となる効果がある。再処理システムは簡素であり、核分裂生成物等の廃棄物の発生場所が限られると共に、フッ素ガス等は一サイクル使用するので、放射性廃棄物量の低減が可能となる。

#### 【0055】

回収される U は高精製度のため再濃縮、貯蔵保管、U ペレット燃料製造が容易である。U と Pu の混合物は不純物として核分裂生成物を含むため、核拡散抵抗性上有利であるとの効果があると同時に、顆粒状なので造粒しないでそのまま燃料被覆管中に振動充填可能なコストの安い燃料として供給可能である。

#### 【0056】

##### 〔実施形態 6〕

本発明の一実施形態である使用済核燃料の再処理方法について、図 6 を用いて説明する。図 6 の構成は図 5 の構成で、二回のフッ化操作の間に酸化転換工程を加えた構成である。この構成でも、図 5 とほぼ同様の効果が得られる。

## 【0057】

使用済核燃料棒を必要に応じて所定長に剪断した後、脱被覆を行う。粉末化した核燃料物質はフッ化装置であるフレイム炉3へ移送される。フレイム炉3へ移送された核燃料物質は、上記の他の実施形態と同様にフッ化されるが、フッ素ガスの供給量、濃度等を調整することで、Uはほぼ9割以上が $UF_6$ の形態で揮発するが、Puは $PuF_4$ の形態で固体としてフレイム炉塔の底に残るようにフレイム炉を運転する。

## 【0058】

$UF_6$  は $UF_6$  精製系6で、フッ化装置3で揮発し同伴している揮発性の核分裂生成物のフッ化物が $NaF$ 、 $MgF_2$ 、 $LiF$ 等の吸着剤で構成される吸着塔で除去され、 $UF_6$  は $DF10^7$  程度まで精製される。精製された $UF_6$  は、ボンベ内に保管するか、再濃縮あるいは燃料製造の工程へ移送される。

## 【0059】

一方、FPと共にフッ化装置（フレイム炉）3の塔底に残留した $PuF_4$  は、次工程である、酸化転換装置8に移送する。酸化転換装置はロータリーキルンタイプで、上部よりFPのフッ化物、未揮発分の $UF_4$ 、 $PuF_4$ の粉末を供給し、下部より水蒸気と水素の混合ガスを供給し、酸化転換反応により、 $UO_2$ 、 $PuO_2$ の混合酸化物粉末が得られる。これらのUとPuの混合酸化物燃料粒子は、実施形態5と同様、再びフッ化装置14で、フッ素ガス2を供給し、フッ化を行う。六フッ化物になり揮発した $UF_6$ と $PuF_6$ は、次の気相加水分解工程に移送する。

## 【0060】

気相加水分解装置15は、流動床タイプで、気相加水分解の際の核となる固体粒子（例えば $UO_2$ 粒子等）を予め流動媒体として加えて用い、水蒸気と水素10を供給し、気相加水分解装置15内で、気体状の $UF_6$ と $PuF_6$ を核である固体粒子表面で直接加水分解し、混合酸化物 $UO_2/PuO_2$ （符号9）を得て回収される。混合酸化物は混合酸化物燃料（MOX）の原料として利用される。フッ化装置3&14内に残留した核分裂生成物4は廃棄物処理工程で処理される。

**【 0 0 6 1 】****【発明の効果】**

本発明によれば使用済核燃料の再処理を行うに際して、従来の方法よりも、種々の点で効果が発揮できる。すなわち、使用済核燃料のフッ化物からウランを高純度で回収するため、ウランの再利用、例えば再濃縮が容易になり、かつ核分裂生成物が除去されているので、ウランの保管等の際の管理が極めて容易である。

**【 0 0 6 2 】**

また、ウランとプルトニウムを混合物として、かつ、そのまま燃料再加工原料として回収できるため、燃料再加工コストを低下できるとともに、高純度のプルトニウムを単独で扱わないため核不拡散性も高くできる。さらに従来の方法に比べ装置、処理施設を簡略化できるため経済性を向上できる。

**【図面の簡単な説明】****【図 1】**

本発明の基本的な実施形態を表す図である。

**【図 2】**

本発明の好適な一実施形態である使用済核燃料の再処理方法に用いられる再処理装置の構成図である。

**【図 3】**

本発明の他の一実施形態である使用済核燃料の再処理方法に用いられる再処理装置の構成図である。

**【図 4】**

本発明のさらに他の一実施形態である使用済核燃料の再処理方法に用いられる再処理装置の構成図である。

**【図 5】**

本発明のさらに他の一実施形態である使用済核燃料の再処理方法に用いられる再処理装置の構成図である。

**【図 6】**

本発明のさらに他の一実施形態である使用済核燃料の再処理方法に用いられる再処理装置の構成図である。

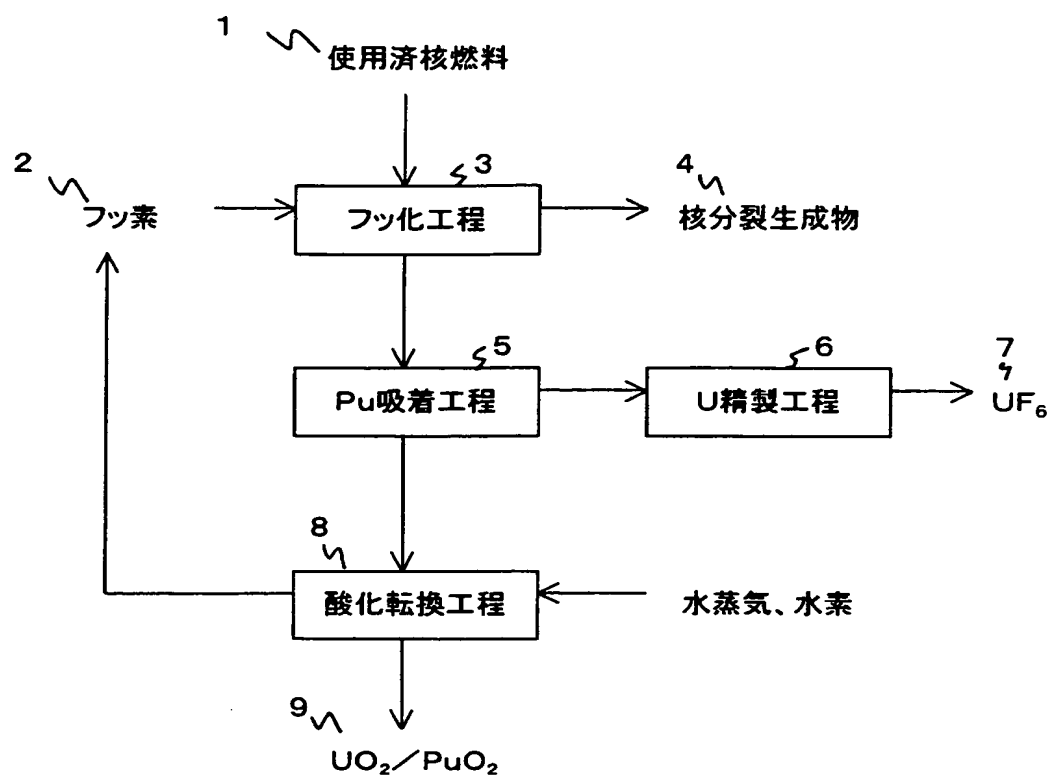
## 【符号の説明】

- 1 使用済核燃料
- 2 フッ素
- 3 フッ化工程
- 4 核分裂生成物
- 5 P u 吸着工程
- 6 U 精製工程
- 7 U F <sub>6</sub>
- 8 酸化転換工程
- 9 U O <sub>2</sub> / P u O <sub>2</sub>
- 1 0 水素
- 1 1 熱分解炉
- 1 4 再フッ化工程
- 1 5 気相加水分解工程

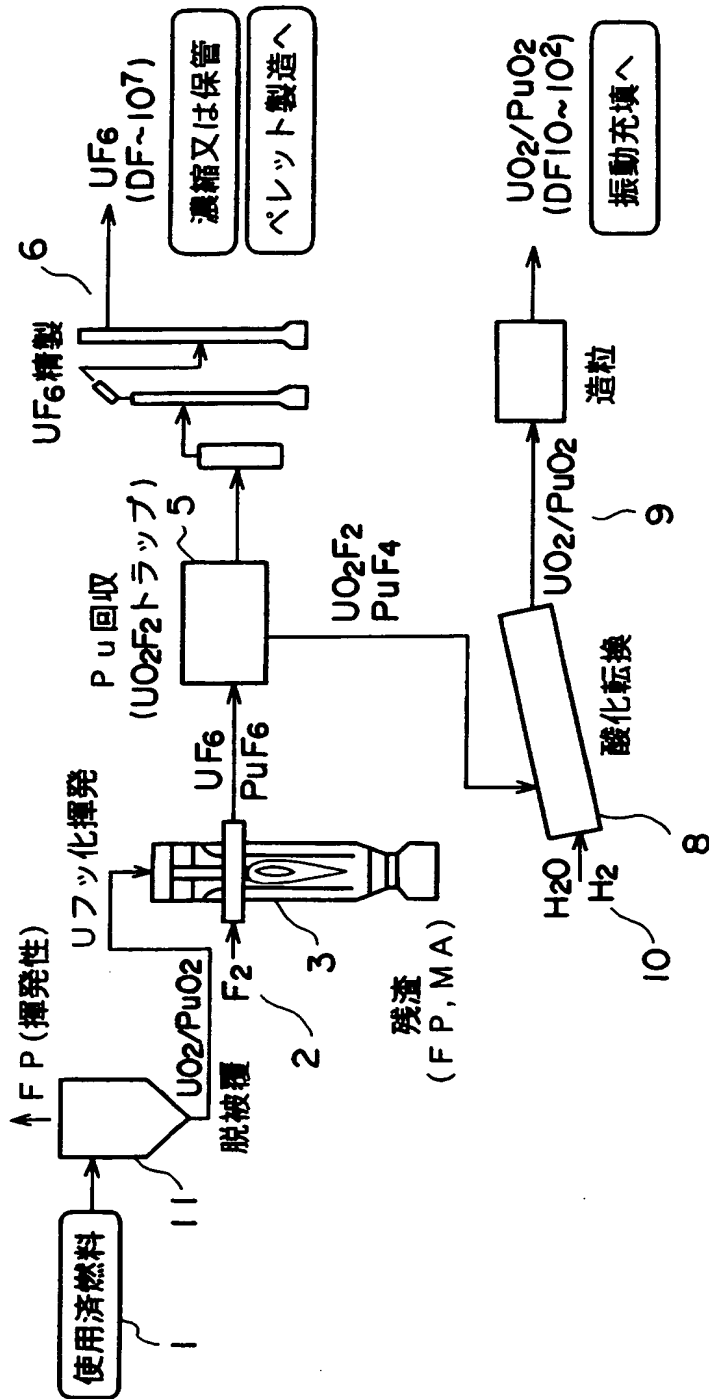
【書類名】

図面

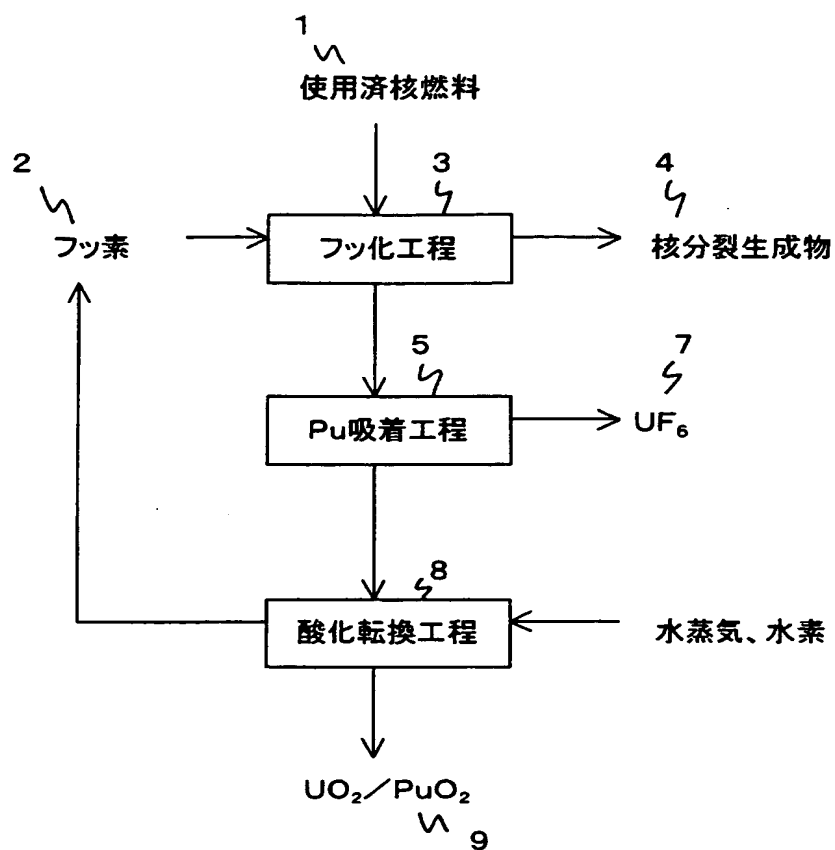
【図 1】



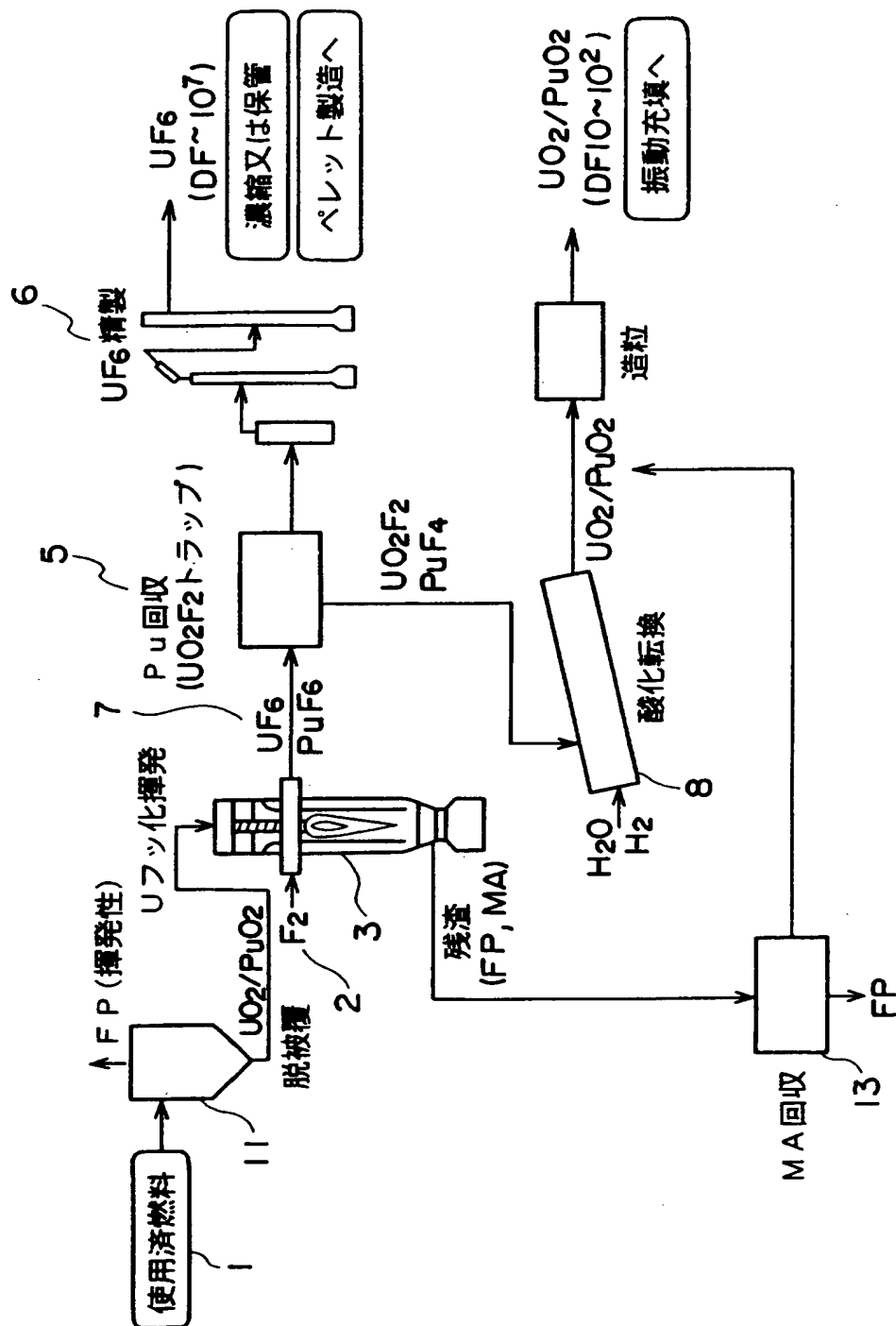
【図 2】



【図 3】

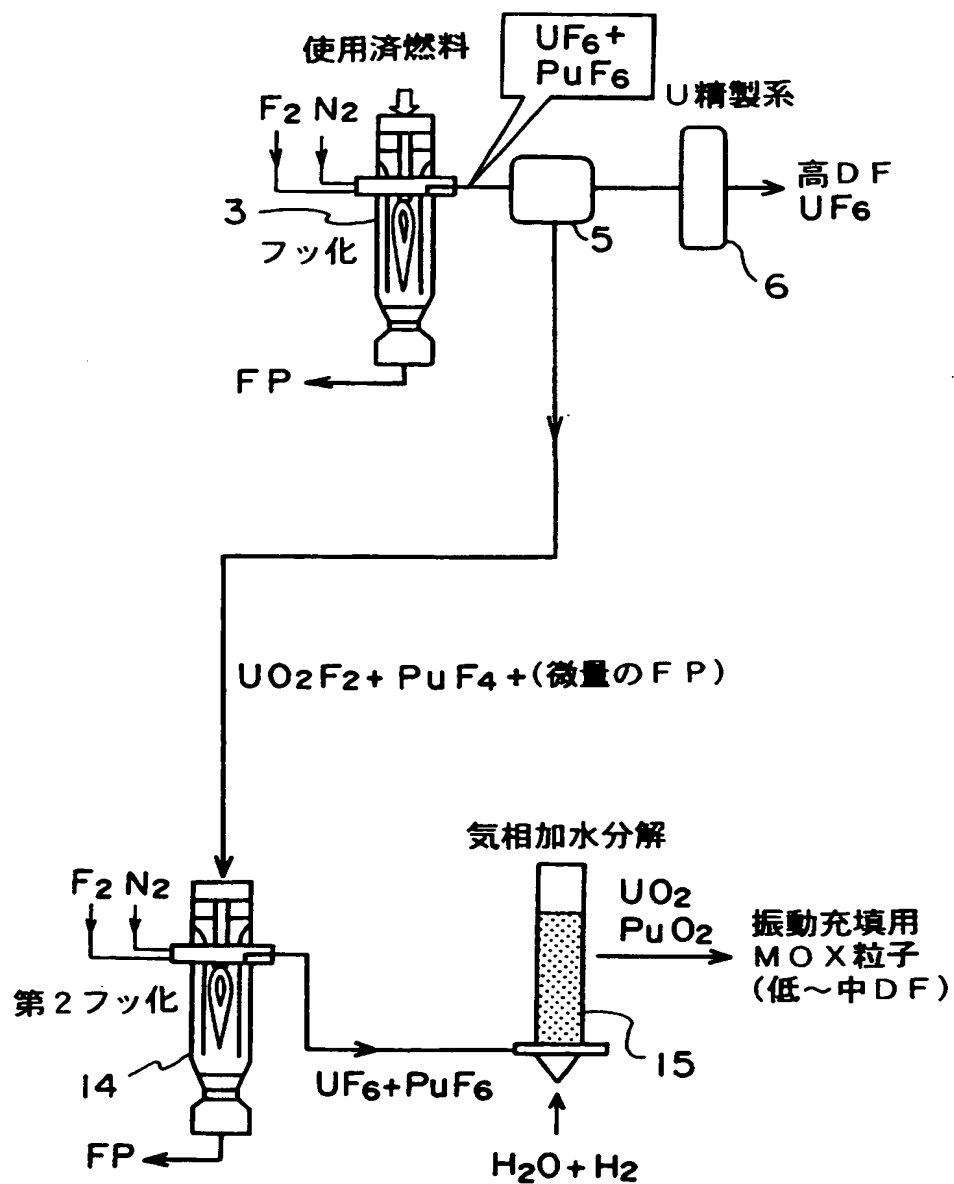


【図 4】

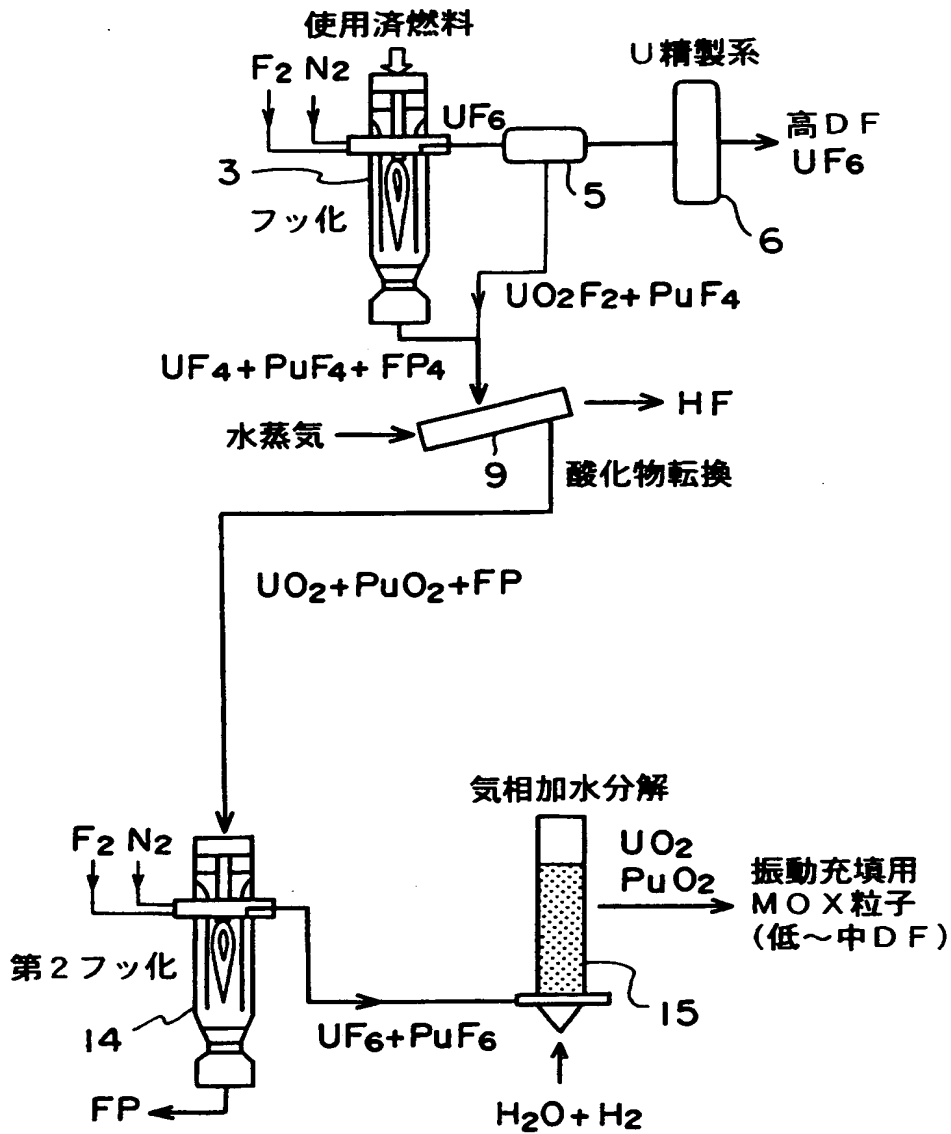




【図 5】



【図 6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 使用済核燃料の再処理速度を向上でき、簡素な工程で高純度のウランとそのまま再使用可能なプルトニウム混合物を低コストに得ること。

【解決手段】 使用済核燃料 1 をフッ化工程 3 でフッ素 2 でフッ化し、ウランと、ウランおよびプルトニウムの混合物と、核分裂生成物とをそれぞれ分離回収する。フッ化において揮発するプルトニウムフッ化物を固定化剤と共に回収し、酸化転換工程 8 を経てウランおよびプルトニウムの混合酸化物 9 として回収する。ウランを高純度で回収するため再利用や保管等の際の管理が極めて容易である。またウランとプルトニウムを混合物として回収できるため、燃料再加工コストを低下できるとともに核不拡散性も高くできる。乾式のため装置や処理施設を簡略化できるので経済性を向上でき、再処理、燃料再加工コストを低減できる。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 0 1 8 5 2 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 5 1 0 8 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 3 1 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区神田駿河台 4 丁目 6 番地
氏 名	株式会社日立製作所

特願 2 0 0 3 - 0 1 8 5 2 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 3 6 8 7 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 1 7 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区内幸町 1 丁目 1 番 3 号
氏 名	東京電力株式会社